

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁷ : A01N 47/30, 47/20, B27K 3/50 // (A01N 47/30, 47:20, 47:12, 43:80, 43:78, 43:40) (A01N 47/20, 47:12, 43:80, 43:70, 43:40)		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 00/59305
		(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:	12. Oktober 2000 (12.10.00)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/02823 (22) Internationales Anmeldedatum: 30. März 2000 (30.03.00) (30) Prioritätsdaten: 199 15 055.9 1. April 1999 (01.04.99) DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): TROY CHEMIE GMBH [DE/DE]; Wunstorfer Strasse 40, D-30926 Seelze (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): LINDNER, Wolfgang [DE/DE]; Lindenstrasse 8, D-30926 Seelze (DE). (74) Anwalt: RICKER, Mathias; Bardehle, Pagenberg, Dost, Altenburg, Geissler, Isenbruck, Galileiplatz 1, D-81679 München (DE).		(81) Bestimmungsstaaten: AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht.</i> <i>Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>	
(54) Title: MICROBICIDAL COMPOSITION			
(54) Bezeichnung: MIKROBIOZIDE ZUSAMMENSETZUNG			
(57) Abstract The invention relates to a microbicidal composition which comprises at least one active ingredient selected from groups a) to d): a) 2-methoxycarbonyl aminobenzimidazole or thiabendazole; b) octylisothiazolin-3-one or 3-iodopropoxy-N-butyl carbamate; c) 2-mercaptopyridine-N-oxide-zinc salt; and d) an N-aryl-N', N'-dimethyl urea derivative or a chlorine-free triazine derivative from the class of 2-methylmercapto-dialkylamino-sym-triazines. The invention also relates to coatings containing the above compound.			
(57) Zusammenfassung Mikrobiozide Zusammensetzung umfassend jeweils mindestens einen Wirkstoff ausgewählt aus den Gruppen a) bis d): a) 2-Methoxycarbonylaminobenzimidazol oder Thiabendazol, b) Octylisothiazolin-3-on oder 3-Iodpropinoxy-N-butylcarbammat, c) 2-Mercaptopyridin-N-oxid-Zinksalz, und d) ein N-Aryl-N,N-dimethylhamstoffderivat oder ein chlorfreies Triazinederivat aus der Reihe der 2-Methylmercapto-dialkylamino-sym-triazine, sowie Beschichtungen, die diese Zusammensetzung enthalten.			

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko		
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Mikrobiozide Zusammensetzung

5

Die vorliegende Erfindung betrifft eine spezielle mikrobiozide Zusammensetzung, deren Herstellung und Verwendung zur Beschichtung von u.a. mineralischen Untergründen sowie Holz und Textilien. Die Zusammensetzung enthält mindestens jeweils einen Wirkstoff aus vier Gruppen verschiedener synergistisch wirkender Fungizide und Algizide. Sie eignet sich insbesondere zur langfristigen Vermeidung der Vergrauung und Verfärbung von Beschichtungen, wie z.B. Fassadenanstrichen.

Außenwand- und Dachbeschichtungen, die der Witterung und dem Licht ausgesetzt sind, verfärben sich schnell durch Anstaubungen und den Bewuchs mit z.B. Schimmelpilzen, Hefen, Algen und Flechten. Der Bewuchs mit Pilzen kann die Beschichtung auch in ihren physikalischen Eigenschaften, wie z.B. Haftfestigkeit, Elastizität usw. ändern. Die beschriebenen Veränderungen sind das Resultat eines komplexen Oberflächenvorgangs, bei dem physikalische und mikrobiologische Effekte zusammenwirken. So beobachtet man, daß Mikroorganismen, Pilze und Algen bevorzugt auf angeschnutzten Fassadenbeschichtungen siedeln und wachsen, bzw. daß von Algen und Pilzen erstbesiedelte Beschichtungen schnell mechanisch durch Staubanhaftungen vergrauen.

25

Hierbei sind insbesondere Beschichtungsmaterialien mit organischen Filmbildnern auf mineralischen Untergründen, Textilausrüstungen und Holzanstriche, aber auch Kunststoffmaterialien zu nennen, die relativ rasch durch

- 2 -

Algen und Pilze bewachsen. Dadurch werden diese Flächen teilweise in wenigen Monaten unansehnlich grün bis schwarz verfärbt.

5 Ferner neigen die zur Energieeinsparung heute an Fassaden angebrachten Vollwärmeschutzsysteme mit Kunstharzputzen aufgrund der physikalischen Eigenschaften sehr stark zum Algen- und Pilzbefall. Bereits nach wenigen Wochen in der Bewitterung hat die Helligkeit abgenommen und die Farbe sich geändert.

10 Daher hat man durch Modifizierung der Beschichtungsmaterialien die Anschmutzneigung verringert. Zum Beispiel kann man die Bindemittel so wählen, daß die Klebrigkeit nach der Filmbildung sehr niedrig liegt. Auch durch die Wahl der Füllstoffe und Pigmente sowie der rheologischen Additive kann man die Verfärbungsneigung günstig beeinflussen. Ganz besonderes Augenmerk hat man
15 auf die Einstellung des Wasserhaushaltes innerhalb derartiger Beschichtungsmittel gelegt. Ein schnelles Abtrocknen nach Durchfeuchtung verhindert Staubaufhaftung sowie Pilz- und Algenwachstum. Ersatz von Bewehrungsfasern aus Cellulose durch solche aus synthetischen Materialien, wie Nylon oder Polyestern, kann die Beschichtung ebenfalls stabiler machen.

20

Man hat ferner erkannt, daß auch der Zusatz von mikrobiozid wirkenden Substanzen zu Beschichtungsmaterialien die Verfärbungen und Vergrauungen verzögern können. Derartige Substanzen sollen in einer Beschichtungsmittel herstellenden Fabrik, typischerweise einer Farbenfabrik, leicht handhabbar sein.
25 Ferner sollen sie die physikalischen Eigenschaften der Beschichtungsmittel nicht oder nur unwesentlich beeinflussen. Besonders bei den heute üblichen lösemittelarmen Dispersionsbeschichtungen werden daher fungizide und algizide Wirkstoffe in Form von wäßrigen Dispersionen als Additive eingesetzt, um das Einbringen von Lösemitteln zu vermeiden.

Zur Verhinderung der Verfärbungen durch mikrobiellen Einfluß weisen moderne Fassadenbeschichtungsmittel mittlerweile kombinierte Fungizide und Algizide auf, wie z.B. eine Kombination von 2-Methoxycarbonylaminobenzimidazol (BCM), 2-Thiocyanatomethylthiobenzothiazol (TCMTB) und 2-Methylthio-4-cyclopropylamino-6-tertiärbutylamino-1,3,5-triazin, die in DE OS 42 42 389 beschrieben sind. Das Handelsprodukt MERGAL S 90 PASTE der Firma Troy Chemie besteht aus 2-Methoxycarbonylaminobenzimidazol (BCM), 2-n-Octylisothiazolin-3-on (OITZ) und 2-Methylthio-4-cyclopropylamino-6-tertiärbutylamino-1,3,5-triazin (Mctt).

Die JP-A 110 35 409 beschreibt algizide und fungizide Zusammensetzungen, die Triazin- und Benzimidazol-Derivate umfassen. Diese Zusammensetzungen können beispielsweise für zirkulierende Wassersysteme, Emulsionsfarben, Lösungsmittelfarben oder Plastikprodukte aus PVP verwendet werden.

Die DE-A 197 05 085 beschreibt Außenfarben mit einer Mischung bestehend aus einem Pyrithionderivat und einem algizid wirksamen Triazin und gegebenenfalls einem Benzimidazol- oder Thiophenderivat, also eine Kombination aus zwei oder drei mikrobiozid wirkenden Klassen von Verbindungen, zur Verhinderung des Bewuchses besonders durch Pilze der Gattung Alternaria.

Es hat sich in der Praxis aber herausgestellt, daß mit den aus dem Stand der Technik bekannten Additiven versetzte Beschichtungsmaterialien oftmals nicht die erwünschte langandauernde Wirksamkeit bei niedriger Einsatzkonzentration erreichen.

- 4 -

So wurden beispielsweise auf einer mit 0,1% Diuron ausgerüsteten Vollwärmeschutzfassade bereits nach 2 Jahren deutliche Verfärbungen durch massiven Algenbewuchs beobachtet.

- 5 Auch der Zusatz von Zinkpyrithion in Kombination mit 2-Methoxycarbonylaminobenzimidazol und einem algizid wirkenden Triazinderivat gemäß der DE-A 197 05 085 kann den Kurzzeitbewuchs durch Alternaria auf exponierten Beschichtungen nicht verhindern. Dieser Effekt kann nicht mit dem als Schnelltest angelegten „Filtertest gemäß VdL-Richtlinie“ entdeckt werden,
10 macht sich aber auf dem Bewitterungsstand oder in Feuchtkammertests bemerkbar.

- Bislang sind nach dem Stand der Technik keine lösemittelfreien Beschichtungsadditive, die für einen umfassenden Schutz gegen Algen und Pilze
15 geeignet sind, bekannt.

- Es besteht ein Bedarf an Beschichtungsstoffen, die eine erweiterte Standzeit der damit hergestellten Beschichtung auf insbesondere mineralischen Untergründen erlauben, gleichzeitig aber wirtschaftlich herstellbar sind und nicht schädlich auf
20 die Umgebung einwirken.

- Aufgabe der Erfindung war es demnach, eine mikrobiozide Zusammensetzung, insbesondere für den Einsatz in Beschichtungsmitteln wie Dispersionsfarben, Kunstharzputzen, Silikonharzfarben, Silikonharzputzen, mineralischen Farben
25 und Putzen, pigmentierten Holzanstrichmitteln auf Alkydharzbasis bereitzustellen, die eine verbesserte Resistenz gegen Vergrauung und Verfärbung durch physikalisch-chemische und biologische Prozesse aufweisen und dadurch eine verlängerte Gebrauchsdauer bekommen.

- 5 -

Durch Verlängerung der Gebrauchsdauer werden Renovierungszeitpunkte herausgeschoben und damit eine wesentliche Reduzierung des Aufwandes zur Erhaltung der Gebäude im Sinne des Umweltschutzes erreicht.

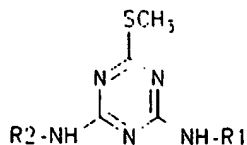
5

Es wurde nun überraschend gefunden, daß erfindungsgemäße Zusammensetzungen, Formulierungen und Beschichtungen, die neben den üblichen Hilfsstoffen, wie z.B. Füllstoffen, Bindemittel aus der Reihe der Acrylate oder Styrolacrylate oder Silikonharze, Titandioxidpigmente, übliche Additive zur
10 Verbesserung der physikalischen Eigenschaften, eine Kombination von mindestens vier Wirkstoffen aus vier verschiedenen Substanzklassen, die im folgenden beschrieben werden, enthalten, langandauernd gegen Verfärbungen und Vergrauungen schützen bzw. geschützt sind. Darüber hinaus kann die erfindungsgemäße Kombination der mindestens vier Wirkstoffe aus
15 verschiedenen Substanzklassen in einer Formulierung bereitgestellt werden, die als Additiv in Beschichtungsmaterialien eingesetzt werden kann und keine organischen Lösemittel benötigt und selbst Lösemittel-frei ist.

Somit betrifft die vorliegende Erfindung eine mikrobiozide Zusammensetzung
20 umfassend jeweils mindestens einen Wirkstoff, ausgewählt aus den Gruppen a), b), c) und d):

- a) 2-Methoxycarbonylaminobenzimidazol oder Thiabendazol,
- b) Octylisothiazolin-3-on oder 3-Iodpropinoxy-N-butylcarbammat,
- 25 c) 2-Mercaptopyridin-N-oxid-Zinksalz (ZPT), und
- d) ein N-Aryl-N',N'-dialkylharnstoffderivat oder ein chlorfreies Triazinderivat aus der Reihe der 2-Methylmercapto-dialkylamino-sym-triazine.

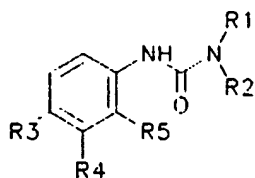
Als chlorfreie Triazin-Derivate sind solche der Formel I



(I),

5 wobei R1 und R2 Alkylgruppen darstellen, und

N',N'-Dialkylharnstoffderivate der Formel II



(II),

10 wobei

R1, R2 Alkylgruppen, bevorzugt Methyl,

R5 H, Chlor, Brom, Fluor oder Alkyl,

R3, R4 H, Chlor, Brom, Alkyl, Trifluormethyl oder O-Aryl, wobei Aryl substituiert sein kann, darstellen,

zu nennen.

Unter die oben bezeichneten Wirkstoffe der Gruppe d) fallen insbesondere
5 folgende Triazin-Derivate mit günstigen physikalischen Eigenschaften, d.h. für
die Konservierung günstigen Eigenschaften, wie z.B. geringe Wasserlöslichkeit
und niedriger Dampfdruck:

Ametryn, Desmetryn, Dimethametryn, Dipropetryn, Methopetryn, Prometryn,
Terbutryn und 2-Methylthio-4-cyclopropylamino-6-tertiärbutylamino-1,3,5-triazin
10 (Mctt), oder ein Gemisch aus zwei oder mehr davon, insbesondere Mctt und/oder
Terbutryn.

Besonders bevorzugt als N',N'-Dialkylharnstoffderivate der Formel II als
Wirkstoffe d) sind die folgenden Verbindungen mit günstigen physikalischen
15 Eigenschaften:

Chlorbromuron, Chlortoluron, Diuron, Difenoxuron, Fluometuron, Isoproturon,
Neburon, oder ein Gemisch aus zwei oder mehr davon, insbesondere Diuron
und/oder Isoproturon.

20

Insbesondere werden erfindungsgemäß die folgenden Kombinationen der
Wirkstoffe a) bis d) eingesetzt:

BCM, Octylisothiazolinon, ZPT und Mctt;

BCM, Octylisothiazolinon, ZPT und Terbutryn.

25

Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen enthalten die Wirkstoffe a) bis d)
vorzugsweise in folgenden Gewichtsanteilen:

- a) 1 - 20 Gew.-%, weiter bevorzugt 3 - 12 Gew.-%,
- b) 0,5 - 5 Gew.-%, weiter bevorzugt 1 - 3 Gew.-%,
- c) 1 - 15 Gew.-%, weiter bevorzugt 3 - 10 Gew.-%,
- 5 d) 1 - 30 Gew.-%, weiter bevorzugt 4 - 15 Gew.-%,

jeweils bezogen auf die Gesamtmenge der Zusammensetzung.

10 Ferner betrifft die vorliegende Erfindung auch eine mikrobiozide Formulierung, vorzugsweise ein Beschichtungsmittel, mit einem Gehalt an der erfindungsgemäßen Zusammensetzung von 0,001 bis 2 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 1 Gew.-%, jeweils bezogen auf die Gesamtmenge der mikrobioziden Formulierung.

15 Die Herstellung der erfindungsgemäßen Formulierung ist mit herkömmlichen, dem Fachmann bekannten Methoden möglich. Sie unterscheidet sich nicht von der Produktion herkömmlicher Formulierungen. Dabei wird die erfindungsgemäße Zusammensetzung bei der Herstellung als zusätzliches Additiv zugegeben.

20 Neben der erfindungsgemäßen Zusammensetzung umfaßt die Formulierung Füllstoffe, Inertbestandteile, Lösemittel und Hilfsmittel. Die Fassaden- und Dachbeschichtungsmittel bestehen aus

Wasser,

einer Kunstharzdispersion und / oder einem Siliconharz als Bindemittel,

25 Titandioxid des Rutiltypes als Pigment,

handelsüblichen Füllstoffen, wie z.B. Calciumcarbonat, Kreiden,

Dispergatoren auf Polyacrylatbasis,
Verdickern auf Cellulosebasis, Xanthanen, Schichtsilikaten,
handelsüblichen Entschäumern,
pH-Reglern, wie z.B. Ammoniak, aliphatischen Aminen, Natronlauge, Kalilauge.

5

Die Beschichtungsmittel können in an sich bekannter Weise formuliert werden. Dabei werden die Bestandteile vermischt, wobei feste Wirkstoffe in Gegenwart der Formulierungshilfsmittel in Wasser zu einer Vormischung feinstvermahlen werden und anschließend in die flüssigen Wirkstoffe eingerührt werden. Es
10 können neben Wasser weitere Lösemittel enthalten sein.

Die Wahl des Lösemittels ist nicht kritisch. Besonders gut für unpolare Systeme eignen sich Aromatenbenzine, Xylol, Trimethylbenzol; Ketone wie z.B. Aceton, Cyclohexanon, Isophoron, Methylisobutylketon; Ether und Glykolether, wie z.B.
15 Diisopropylether, Dimethoxyethan, Diethylenglykoldimethylether, Triethylen-glykoldimethylether, Ester wie Essigsäureethylester, Essigsäurebutylester; Glykole, deren Mono- und Diether oder deren Mono- oder Diester.

Es können weitere Additive enthalten sein, wie Entschäumer, Dispergatoren,
20 Emulgatoren, Farbstoffe, Pigmente, Filmbildehilfsmittel, Verdicker, Rheologie-modifizierungsmittel, Weichmacher etc.

In den erfindungsgemäßen Formulierungen bzw. Beschichtungsmitteln können auch weitere bekannte antimikrobiell wirkende Substanzen eingesetzt werden.
25 Beispielsweise seien die folgenden weiteren Fungizide und Bakterizide genannt:
quaternäre Ammoniumsalze (Quats), wie z.B. Didecyldimethylammoniumchlorid, Thiocyanatverbindungen wie z.B. 2-Thiocyanatomethylthiobenzothiazol,

- 10 -

Carbamate wie z.B. Iodpropinylbutylcarbamate,

Isothiazolinon-Derivate, die verschieden von den Substanzen gemäß b) sind, wie z.B. 5-Chlor-2-methylisothiazolinon/2-Methylisothiazolinon

Triazolfungizide, wie z.B. Tebuconazol, Propiconazol

5 Imidazolfungizide, wie z.B. Prochloraz, Imazalil

Aldehyde, wie z.B. Formaldehyd oder seine Depotverbindungen

Nitrile, wie z.B. Tetrachlorophthalodinitril

anorganische Oxide, wie z.B. Zinkoxid.

- 10 Ferner betrifft die vorliegende Erfindung auch die Verwendung der erfindungsgemäßen Formulierung zur mikrobioziden Ausrüstung von Beschichtungsmitteln, insbesondere Lacken, Farben oder Putzen, insbesondere von Fassadenbeschichtungsmitteln, Dachsteinbeschichtungsmitteln, Dispersionsfarben, Kunstharzputzen, Silikonharzfarben, Silikonharzputzen, mineralischen
15 Farben, mineralischen Putzen und pigmentierten Holzanstrichmitteln auf Alkydharzbasis.

Ferner kann die erfindungsgemäße Zusammensetzung bzw. Formulierung auch in Dichtungsmassen und anderen technischen Beschichtungen vorteilhaft eingesetzt
20 werden.

Wir haben nun überraschend gefunden, daß die so hergestellten Beschichtungsmittel wesentlich stabiler und dauerhafter gegen Verfärbungen und Vergrauungen sind als die bislang bekannten.

Es wurde darüber hinaus gefunden, daß die Beschichtungen auch gegen Mikroorganismen effektiv geschützt sind, die von konventionellen, fungizid und algizid ausgerüsteten Fassadenbeschichtungen isoliert wurden.

- 5 Das heißt, Beschichtungen, die die erfindungsgemäße Zusammensetzung haben oder mit angegebenen Wirkstoffmischungen versehen sind, werden auch in Regionen nicht bewachsen und widerstehen der Verfärbung, in denen die Ausrüstung mit den heute üblichen Mikrobioziden unwirksam ist.
- 10 Die erfindungsgemäßen Beschichtungen zeichnen sich insbesondere durch hohe Widerstandsfähigkeit gegen den Bewuchs durch ein breites Spektrum von Algen,
wie Grünalgen z.B. folgender Arten:
Chlamydomonas, Chlorella, Chlorococcum, Microspora, Platymonas,
15 Pleurococcus, Scenedesmus, Stichococcus, Trentepohlia und Ulothrix;
Blaualgen (Cyanophyta), wie z.B.:
Anabaena, Anacystis, Chroococcus, Gleocapsa, Myrocystis, Nostoc, Oscillatoria, Scytonema und Spirulina ;
Gelbgrünalgen, wie z.B. Tribonema;
- 20 Bakterien, wie z.B. Escherichia coli;
Hefen, wie z.B. Rhodotorula spec.; und
Pilzen, wie z.B.:
Alternaria alternata, Aspergillus niger, Aureobasidium pullulans, Penicillium funiculosum, Trichoderma viride
- 25 aus.

- 12 -

Ganz allgemein betrifft die vorliegende Erfindung die Verwendung der oben beschriebenen Zusammensetzung bzw. Formulierung zur Vermeidung der Vergrauung und Verfärbung von Beschichtungen, insbesondere von Außenanstrichen.

5

Darüber hinaus stellt die erfindungsgemäße Zusammensetzung bzw. Formulierung einen wesentlichen Fortschritt zum Stand der Technik dar, weil sie sich leicht in anwenderfreundlichen lösemittelfreien Formulierungen herstellen lassen, in den Beschichtungsmitteln stabil sind, keine Verfärbungen verursachen und damit einfach als Additiv anwendbar sind. Die erfindungsgemäßen Zusammensetzungen bzw. Formulierungen erlauben darüber hinaus eine Verringerung des ökonomischen Aufwandes, insbesondere dahingehend, daß die Konzentrationen der Einzelwirkstoffe niedriger liegen als bei den bislang bekannten „Zweier- oder Dreierkombinationen“. Ferner verlängern sich die

10

15

Renovierungszyklen der mit den erfindungsgemäß verwendeten Beschichtungsmitteln versehenen Fassaden deutlich. Dadurch wird ein wesentlicher Beitrag zum Schutz der Umwelt und der Verringerung des Energieverbrauchs geleistet. Besonders vorteilhaft werden Beschichtungen auf Vollwärmeschutzsystemen (WDVS) erfindungsgemäß ausgeführt.

20

Die vorliegende Erfindungen soll nunmehr anhand einiger Beispiele erläutert werden.

25 **Beispiel 1**

Herstellung einer Dispersionsfarbe (Tabelle 1)

Tabelle 1

Fassadenfüllfarbe			Herstellungsweise
Name/Substanz	Gew.-%	Funktion	
Wasser	13,4		vorlegen
Calgon® N 10%ig	1,4	Polyphosphat	zugeben
Tylose® MHB6000y	0,2	Verdicker	quellen lassen, 15 min am Dissolver
Additol® XW 330	0,3	Polyacrylat NH4	
Konservierungsstoffe nach Tabelle 1	1,0		eindispersieren
Agitan® 218	0,3	Entschäumer	eindispersieren
Titandioxid 2065	13,0	Pigment	eindispersieren
Durcal® 5 my	28,3	Füllstoff Carbonat	eindispersieren
Omya Calibrite® SL	16,1	Füllstoff	eindispersieren
China Clay B	2,0	Füllstoff	eindispersieren
MOWILITH® DM 611	20,0	Bindemittel Dispersion Acrylat	eindispersieren
Testbenzin 180/210	2,7	Filmbildehilfsmittel	eindispersieren
Butyldiglykolacetat	0,9	Filmbildehilfsmittel	eindispersieren
Natronlauge 10%	0,2	pH-Regulator	eindispersieren
MERGAL® K 9 N	0,2	Lagerkonservierung	eindispersieren
Summe:	100		

Vergleich mit Produkten aus DE 197 05 085 A1 (Tabelle 2)

Tabelle 2

	Diuron [mg/kg]	Mctt [mg/kg]	BCM [mg/kg]	ZPT [mg/kg]	OITZ [mg/kg]	Summe Wirkstoffe : [mg/kg]	
1		5	5	7	2,2	19,2	
2		6	2	8	2,2	18,2	
3 Gemisch VII aus DE-A 197 05 085		4,38	10	5	-	19,38	Vergleich
4 Gemisch VII aus DE-A 197 05 085		4,38	10	10	-	24,38	Vergleich
5 entsprechend ACTICID® EP PASTE	19,9	-	8,5	-	3	31,4	Vergleich

- 5 Die Herstellung der Farbe geschah auf eine aus dem Stand der Technik bekannte Weise in einem Netzsch-Dissolver. Dazu wurde zunächst Wasser vorgelegt und anschließend die Verdicker und übrigen Komponenten in der in Tabelle 1 angegebenen Reihenfolge eingebracht und dispergiert.
- 10 In den folgenden Beispielen 2 und 3 stellt jeweils die Probe 1 eine Formulierung ohne mikrobiozide Wirkstoffe dar. Die Proben 2 und 3 sind jeweils erfindungsgemäße Formulierungen, alle weiteren Formulierungen Vergleichsproben.

15 Beispiel 2

Bewuchsprüfung gegen Pilze, besondere *Alternaria alternata* im Labortest (VdL-Methode 06).

Herstellung und Vorbehandlung der Proben wie unter Beispiel 3 beschrieben.

Wässerung der Prüflinge über 72 und 144 Stunden zur Simulation der Alterung bei Bewitterung.

- 5 Die Ergebnisse der Tests unter Verwendung einer Dispersionsfarbe aus Beispiel 1 sind in Tabelle 3 gezeigt:

Tabelle 3

Probe Nr.		BCM [mg/kg]	OITZ [mg/kg]	ZPT [mg/kg]	Mett [mg/kg]	Wässerung [h]	An+Pf	Aa96820	Ms
1	Positiv- vergleich	0	0	0	0	72	4	4	4
2		125	57,5	250	125	72	0	1	2
3		250	115	500	250	72	0	0	2
4	Vergleich	250	0	250	125	72	0	3	4
5	Vergleich	500	0	500	250	72	0H	2	3
6	Vergleich	250	115	0	125	72	0	4	4
7	Vergleich	500	230	0	250	72	0H	3	4
8	Vergleich	0	115	375	125	72	4	3	3
9	Vergleich	0	230	750	250	72	3	2	3
10	Vergleich	125	250	115	0	72	0	3	4
11	Vergleich	250	500	230	0	72	0	1	4
1	Positiv- vergleich	0	0	0	0	144	4	4	4
2		125	57,5	250	125	144	2	3	3
3		250	115	500	250	144	1	1	3
4	Vergleich	250	0	250	125	144	0	3	4
5	Vergleich	500	0	500	250	144	0	3	3
6	Vergleich	250	115	0	125	144	1	4	4
7	Vergleich	500	230	0	250	144	1	4	4
8	Vergleich	0	115	375	125	144	4	3	3
9	Vergleich	0	230	750	250	144	4	3	3
10	Vergleich	125	250	115	0	144	1	3	4
11	Vergleich	250	500	230	0	144	1	3	4

- 16 -

An+Pf = *Aspergillus niger* und *Penicillium funiculosum*

Ms = *Mucor spec.*

Aa96820 = *Alternaria alternata* (wild site strain - 96820)

5

Beispiel 3

Bewuchsprüfung gegen Algen im Labortest (VdL-Methode 05).

- 10 Die so erhaltenen Farbproben wurden jeweils zu 300 g/m² auf Rundfilterpapiere (Nr. 597 von Schleicher & Schüll, Durchmesser 5,5 cm) gestrichen und anschließend 72 Stunden lang bei einer Temperatur von 30°C getrocknet.

- 15 Zur Simulation einer Auslaugung durch Regenwasser wurden die mit Farbe beschichteten Prüfkörper 72 und 144 Stunden mit Leitungswasser gewässert. Das Auslaugwasser wurde jeweils nach 24 Stunden gewechselt.

- 20 Die Prüfung der Bewuchsfestigkeit gegen Algen wurde auf festen Bold-Algen-Nährböden durchgeführt. Die trockenen Prüfkörper wurden nach beidseitiger Sterilisierung unter UV-Licht in Petrischalen auf die Nährböden aufgelegt. Jeweils 5 ml einer gut gewachsenen Algenkultur in Bold-Nährlösung wurde auf die zu prüfende Oberfläche unter Sterilbedingungen aufgeimpft, so daß die Farboberfläche schwach grün gefärbt war.

- 17 -

Nach einer Bebrütungszeit von 14 Tagen bei einer Temperatur von 29°C wurde der Grad des Bewuchses mit Algen auf den Farbanstrichen visuell in einer Skala von 0 bis 4 bewertet:

- | | | |
|----|----|--|
| 5 | 0 | Anstrich nicht bewachsen |
| | 0H | Anstrich nicht bewachsen; Ausbildung einer Hemmzone |
| | 1 | Anstrich gering bewachsen, unter 10 % der Oberfläche |
| | 2 | Anstrich bewachsen, 10 bis 30 % der Oberfläche |
| | 3 | Anstrich bewachsen, 30 bis 60 % der Oberfläche |
| 10 | 4 | Anstrich überwachsen, über 60 % der Oberfläche |

Die Ergebnisse sind in Tabelle 4 gezeigt:

- 18 -

Tabelle 4

Probe Nr.		BCM [mg/kg]	OITZ [mg/kg]	ZPT [mg/kg]	Mctt [mg/kg]	Summe Wirk- stoffe [mg/kg]	Aus- lau- gung [h]	Chf+ Stb	Praxisalgen 97557
1	Positiv- vergleich	0	0	0	0	-	72	4	4
2		125	57,5	250	125	557,5	72	0	0
3		250	115	500	250	1115	72	0	0
4	Vergleich	250	0	250	125	625	72	0	4
5	Vergleich	500	0	500	250	1250	72	0	3
6	Vergleich	250	115	0	125	490	72	0	4
7	Vergleich	500	230	0	250	980	72	0	4
8	Vergleich	0	115	375	125	615	72	0	2
9	Vergleich	0	230	750	250	1230	72	0	0
10	Vergleich	125	250	115	0	490	72	2	4
11	Vergleich	250	500	230	0	980	72	0	4
1	Positiv- vergleich	0	0	0	0	-	144	4	4
2		125	57,5	250	125	557,5	144	0	1
3		250	115	500	250	1115	144	0	0
4	Vergleich	250	0	250	125	625	144	0	4
5	Vergleich	500	0	500	250	1250	144	0	3
6	Vergleich	250	115	0	125	490	144	1	3
7	Vergleich	500	230	0	250	980	144	0	3
8	Vergleich	0	115	375	125	615	144	0	3
9	Vergleich	0	230	750	250	1230	144	0	1
10	Vergleich	125	250	115	0	490	144	4	3
11	Vergleich	250	500	230	0	980	144	3	4

Chf+Stb Chlorella fusca und Stichococcus bacillaris

Beispiel 4

Kunstharzputz: Bewuchsprüfung gegen Algen im Labortest (VdL-Methode 05)

5

Tabelle 5

Dispersionsputz	Gew.-%	
Name/Substanz		Funktion
Wasser	12,1	
Sapetin® D20	0,1	
Rhodopol® 50MD	0,1	Verdicker
"Entschäumer"	0,2	Entschäumer
Bayertitan® R-KB5	3,0	Pigment TiO ₂
Omyacarb® 5 my	4,0	Füllstoff Carbonat
Omyacarb® 7 my	5	Füllstoff Carbonat
Omyacarb® 23 my	10	Füllstoff Carbonat
Plastorit® 000 / 10my	2,5	Füllstoff Al-Mg-Silikat
MOWILITH® SDM765	12,0	Bindemittel Dispersion
Testbenzin 180/210	1,0	Filmbildehilfsmittel
TegoPhobe® 1040	0,5	Hydrophobierung
Arbocel® B400	0,5	Faserfüllstoff Rißüberbr.
Lubranil® A1520	0,5	Additiv Oberfl.rißbildung
Omyacarb® 160 my	11,0	Körnung CaCO ₃
Austrotec® 10/15 1200 my	36,5	Körnung
	1	Filmkonservierung
	100	

Die Herstellung des Dispersionsputzes erfolgte analog der Herstellung gemäß

10 Beispiel 1.

- 20 -

Dabei entsprechen in den Beispielen 4 bis 7 die jeweilige Probe 1 einer Formulierung gemäß der Erfindung und die weiteren Proben Vergleichsproben.

- 5 Dabei wurde in der erfindungsgemäßen Probe sowie in den Vergleichsproben 2 und 4 als Triazin stets Mctt verwendet, während Vergleichsproben 3 und 5 Terbutryn als Triazin enthielten.

Die Ergebnisse des Beispiels 4 sind in Tabelle 6 gezeigt:

10

Tabelle 6

Probe Nr.		BCM [mg/kg]	OITZ [mg/kg]	Triazin [mg/kg]	ZPT [mg/kg]	Summe Wirkstoffe [mg/kg]	Chf+Stb 72 h gewässert	Chf+Stb 144 h gewässert	Praxisalgen: 96820 72 h gewässert	Praxisalgen: 96820 144 h gewässert
1		177	246	370	383	1176	0	0	0	0
2	Vergleich	746	719	477	-	1942	0	0	0	1
3	Vergleich	677	361	967	-	2005	0	0	1	1
4	Vergleich	753	-	425	368	1546	0	0	0	0-1
5	Vergleich	742	310	971	-	2023	0	0	1	1

Beispiel 5

Kunstharzputze: Bewuchsprüfung gegen Pilze, insbesondere *Alternaria alternata*
5 im Labortest (VdL-Methode 06).

Die Ergebnisse der Überprüfung sind in Tabelle 7 gezeigt:

Tabelle 7

Nr.		BCM [mg/kg]	OITZ [mg/kg]	Triazin [mg/kg]	ZPT [mg/kg]	Summe Wirkstoffe [mg/kg]	An+Pf 72 h gewässert	An+Pf 144 h gewässert	Praxispilze Alternaria alternata 72 h gewässert	Praxispilze Alternaria alternata 144 h gewässert
1		177	246	370	383	1176	0H	0H	0H	0H-1
2	Vergleich	746	719	477	-	1942	0H	0H	0H	0H-1
3	Vergleich	677	361	967	-	2005	0H	0	0H-1	3
4	Vergleich	753	-	425	368	1546	0H	0H	2	4
5	Vergleich	742	310	971	-	2023	0H	0	0H	4

Beispiel 6**Bewuchsprüfung gegen Algen im Feuchtkammertest (ITECH-Methode)**

5

Nach der von Prof. Boulon beim ITECH, Lyon, entwickelten Testmethode wurden die Prüflinge auf Calciumsilikatträgern in einem feucht-warmen Klima belichtet, beregnet und mit extrem hohen Algenkonzentrationen belastet. In der Kammer bildete sich eine Flora aus Bakterien, Pilzen und Algen aus. Eingepflanzt wurden Algenlösungen von *Chlorella fusca*, *Stichococcus bacillaris*, *Trentepohlia odorata*.

10

Die Testdauer betrug 6 Wochen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 8 gezeigt:

15

Tabelle 8

							Wochen			
Probe		BCM [mg/kg]	OITZ [mg/kg]	Triazin [mg/kg]	ZPT [mg/kg]	Summe Wirkstoffe [mg/kg]	2	3	4	6
1		177	246	370	383	1176	0	0	1	2
2	Vergleich	746	719	477	-	1942	0	0	1	2
3	Vergleich	677	361	967	-	2005	0	1	4	5
4	Vergleich	753	-	425	368	1546	0	1	3	4
5	Vergleich	742	310	971	-	2023	0	0	1	3
6	Positiv- vergleich	-	-	-	-	-	3	4	5	5

Beispiel 7

Prüfung der verfärbungsstabilisierenden Wirkung in der Außenbewitterung.

5

Die Kunstharzputze aus Beispiel 6 wurden auf einem Bewitterungsstand in Seelze unter 45° Neigung gegen Norden bewittert. Zur Prüfung der Farbänderungen wurden vor Beginn der Prüfung und während der Bewitterung Lab-Werte gemessen. Die Tabelle 9 zeigt die Ergebnisse:

10

Tabelle 9

Probe Nr.	BCM [mg/kg]	OITZ [mg/kg]	Triazin [mg/kg]	ZPT [mg/kg]	Summe Wirkstoffe [mg/kg]	Bemerkung	Lab-Farbmeßwerte
1	177	246	370	383	1176		03.07.98: L:89.5/a:0.4/b:2.5 16.12.98: L:81.6/a:0.1/b:6.9
4	753	-	425	368	1546	Vergleich	03.07.98: L:88.8/a:0.3/b:2.4 16.12.98: L:78.7/a:1.5/b:7.8
6	-	-	-	-		Positiv- Vergleich	16.12.98: L:72.8/a:0.9/b:14.5

Patentansprüche

5

1. Mikrobiozide Zusammensetzung umfassend jeweils mindestens einen Wirkstoff, ausgewählt aus den Gruppen a), b), c) und d):

- 10 a) 2-Methoxycarbonylaminobenzimidazol oder Thiabendazol,
b) Octylisothiazolin-3-on oder 3-Iodpropinoxy-N-butylcarbammat,
c) 2-Mercaptopyridin-N-oxid-Zinksalz, und
d) ein N-Aryl-N',N'-dialkylharnstoffderivat oder ein chlorfreies Triazinderivat aus der Reihe der 2-Methylmercapto-dialkylamino-sym-triazine.

15

2. Zusammensetzung nach Anspruch 1 mit folgenden Gewichtsanteilen der Wirkstoffe a) bis d):

- a) 1 - 20 Gew.-%,
b) 0,5 - 5 Gew.-%,
20 c) 1 - 15 Gew.-%,
d) 1 - 30 Gew.-%,

jeweils bezogen auf die Gesamtmenge der Zusammensetzung und mindestens 30 Gew.-% üblicher Hilfsmittel.

3. Zusammensetzung nach Anspruch 2, mit folgenden Gewichtsanteilen der Wirkstoffe a) bis d):
- a) 3 - 12 Gew.-%
 - b) 1 - 3 Gew.-%
 - 5 c) 3 - 10 Gew.-%
 - d) 4 - 15 Gew.-%,
- jeweils bezogen auf die Gesamtmenge der Zusammensetzung.
4. Mikrobiozide Formulierung, die einen Gehalt an der Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 3 von 0,001 bis 2 Gew.-%, vorzugsweise 0,01 bis 1 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmenge der mikrobioziden Formulierung, und übliche Hilfsmittel umfaßt.
- 10
5. Verwendung der mikrobioziden Formulierung gemäß Anspruch 4 zur mikrobioziden Ausrüstung von Beschichtungsmitteln.
- 15
6. Verwendung nach Anspruch 5, wobei das Beschichtungsmittel ein Fassadenbeschichtungsmittel, Dachsteinbeschichtungsmittel, Dispersionsfarbe, Kunstharzputz, Silikonharzfarbe, Silikonharzputz, mineralische Farbe, mineralischer Putz, oder ein pigmentiertes Holzanstrichmittel auf Alkydharzbasis ist.
- 20
7. Verwendung der mikrobioziden Zusammensetzung oder Formulierung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4 zur Vermeidung von Vergrauung und Verfärbung von Beschichtungen.
- 25

- 28 -

8. Verfahren zur Herstellung einer Formulierung nach Anspruch 4, das umfaßt:

Vermischen der Bestandteile, wobei feste Wirkstoffe in Gegenwart der Formulierungshilfsmittel in Wasser zu einer Vormischung feinstvermahlen werden und anschließend die flüssigen Wirkstoffe eingerührt werden.

5

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/02823

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

IPC 7 A01N47/30 A01N47/20 B27K3/50 //(A01N47/30,47:20,47:12,
43:80,43:78,43:40),(A01N47/20,47:12,43:80,43:70,43:40)

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

IPC 7 A01N B27K

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, CHEM ABS Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	DE 197 05 085 A (SCHUELKE & MAYR GMBH) 6 August 1998 (1998-08-06) cited in the application page 2 -page 3 page 4, line 54 -page 5, line 41; claims 1,6,7	1-8
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1999, no. 04, 30 April 1999 (1999-04-30) & JP 11 005707 A (TAKEDA CHEM IND LTD), 12 January 1999 (1999-01-12) abstract	1-8

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

18 August 2000

Date of mailing of the international search report

28/08/2000

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Muellners, W

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 00/02823

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1999, no. 05, 31 May 1999 (1999-05-31) & JP 11 035409 A (TAKEDA CHEM IND LTD), 9 February 1999 (1999-02-09) cited in the application abstract ---	1-8
A	GB 2 304 574 A (ADVANCED ENGINEERING SERVICES) 26 March 1997 (1997-03-26) claims ---	1-8
A	WO 98 21962 A (TROY CORP) 28 May 1998 (1998-05-28) page 1 -page 4, line 10 page 7, paragraph 1 ---	1-8
A	US 4 900 736 A (DIEHL KARL-HEINZ) 13 February 1990 (1990-02-13) column 1, line 9 - line 63 column 2, line 32 - line 51; claims 1,3; example 2 -----	1-8

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

information on patent family members

International Application No

PCT/EP 00/02823

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 19705085 A	06-08-1998	AU 5493498 A BR 9807538 A EP 0979033 A WO 9833380 A	25-08-1998 08-02-2000 16-02-2000 06-08-1998
JP 11005707 A	12-01-1999	NONE	
JP 11035409 A	09-02-1999	NONE	
GB 2304574 A	26-03-1997	NONE	
WO 9821962 A	28-05-1998	AU 5448998 A	10-06-1998
US 4900736 A	13-02-1990	US 4770705 A	13-09-1988

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Inter: nales Aktenzeichen

PCT/EP 00/02823

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 A01N47/30 A01N47/20 B27K3/50 //(A01N47/30,47:20,47:12,43:80,43:78,43:40),(A01N47/20,47:12,43:80,43:70,43:40)

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 A01N B27K

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ, CHEM ABS Data

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	DE 197 05 085 A (SCHUELKE & MAYR GMBH) 6. August 1998 (1998-08-06) in der Anmeldung erwähnt Seite 2 -Seite 3 Seite 4, Zeile 54 -Seite 5, Zeile 41; Ansprüche 1,6,7	1-8
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1999, no. 04, 30. April 1999 (1999-04-30) & JP 11 005707 A (TAKEDA CHEM IND LTD), 12. Januar 1999 (1999-01-12) Zusammenfassung	1-8

-/--



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

18. August 2000

Absanddatum des internationalen Recherchenberichts

28/08/2000

Name und Postanschrift der internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Muellners, W

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1999, no. 05, 31. Mai 1999 (1999-05-31) & JP 11 035409 A (TAKEDA CHEM IND LTD), 9. Februar 1999 (1999-02-09) in der Anmeldung erwähnt Zusammenfassung ---	1-8
A	GB 2 304 574 A (ADVANCED ENGINEERING SERVICES) 26. März 1997 (1997-03-26) Ansprüche ---	1-8
A	WO 98 21962 A (TROY CORP) 28. Mai 1998 (1998-05-28) Seite 1 -Seite 4, Zeile 10 Seite 7, Absatz 1 ---	1-8
A	US 4 900 736 A (DIEHL KARL-HEINZ) 13. Februar 1990 (1990-02-13) Spalte 1, Zeile 9 - Zeile 63 Spalte 2, Zeile 32 - Zeile 51; Ansprüche 1,3; Beispiel 2 -----	1-8

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/02823

Im Recherchenbericht angeführtes Patentedokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 19705085 A	06-08-1998	AU 5493498 A BR 9807538 A EP 0979033 A WO 9833380 A	25-08-1998 08-02-2000 16-02-2000 06-08-1998
JP 11005707 A	12-01-1999	KEINE	
JP 11035409 A	09-02-1999	KEINE	
GB 2304574 A	26-03-1997	KEINE	
WO 9821962 A	28-05-1998	AU 5448998 A	10-06-1998
US 4900736 A	13-02-1990	US 4770705 A	13-09-1988